

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公表特許公報 (A)

(11) 特許出願公表番号

特表2002-501813

(P2002-501813A)

(43) 公表日 平成14年1月22日 (2002.1.22)

(51) Int.Cl.	識別記号	F I	テコード (参考)
B 0 1 D 53/32		B 0 1 D 53/32	3 G 0 9 1
53/86		F 0 1 N 3/08	C 4 D 0 4 8
F 0 1 N 3/08		B 0 1 D 53/36	

審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 16 頁)

(21) 出願番号 特願2000-529889(P2000-529889)
 (86) (22) 出願日 平成11年1月21日 (1999.1.21)
 (85) 翻訳文提出日 平成12年7月26日 (2000.7.26)
 (86) 国際出願番号 PCT/GB99/00212
 (87) 国際公開番号 WO99/38603
 (87) 国際公開日 平成11年8月5日 (1999.8.5)
 (31) 優先権主張番号 9801775.9
 (32) 優先日 平成10年1月29日 (1998.1.29)
 (33) 優先権主張国 イギリス (GB)

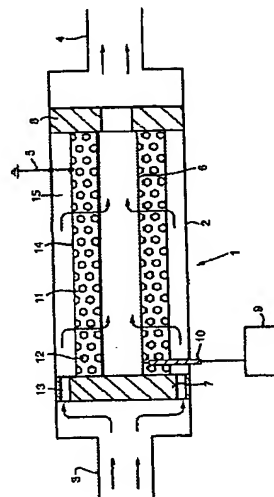
(71) 出願人 エイイーエイ テクノロジー パブリック
 リミテッド カンパニー
 イギリス オーエックス11 0アールエイ
 オックスフォードシャー デイドコット
 ハーウエル 329
 (72) 発明者 シーガル ディヴィッド レスリー
 イギリス オーエックス14 3エイビー
 オックスフォードシャー アービンドン
 ラドリー フォックスボロー ロード 43
 (74) 代理人 弁理士 中村 稔 (外9名)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 ガスのプラズマ処理

(57) 【要約】

排気、特に内燃機関の排気から窒素酸化物及び炭素質燃
 焼生成物を同時に除去する為のプラズマ反応器であっ
 て、一般式 $A_{2-x}A^1B_{1-x}B^1O_4$ を有する混合金属酸化物
 製ガス透過性ベッドを含む反応器。



FEST AVAILABLE COPY

【特許請求の範囲】

【請求項1】 排出ガスから窒素酸化物及び炭素質燃焼生成物を同時に除去する為のプラズマ反応器であって、ガス排出系に接続される反応器室、該反応器内に含まれる活性物質のガス透過性ベッド、排出ガスを該活性物質のベッドに通す為の手段及び該活性物質のベッドを通過する排出ガスをプラズマ状態に励起する為の手段を含む反応器において、該活性物質のベッドが一般式 $A_{2-x}A^1B_{1-y}B^1O_4$ を有する混合金属酸化物を含むことを特徴とする反応器。

【請求項2】 内燃機関排出ガスから窒素酸化物及び炭素質燃焼生成物を同時に除去する為のプラズマ反応器であって、内燃機関の排出系に接続される反応器室(1)、排出ガスを該反応器(1)内に含まれる該活性物質(12)のベッドの中に通す為の手段(6、7、8、13、14)、及び該活性物質(12)のベッドを通過する排出ガスをプラズマ状態に励起する為の手段(5、6、9、10、14)を含む反応器において、該活性物質(12)のベッドが一般式 $A_{2-x}A^1B_{1-y}B^1O_4$ を有する混合金属酸化物を含むことを特徴とする反応器。

【請求項3】 該混合金属酸化物の成分 AA^1 が、La、Sr、Ba及びKから成る元素の群から選ばれ、該混合金属酸化物の成分 BB^1 が、Co、Mn、Cr、Cu、Mg及びVから成る元素の群から選ばれる、請求項2に記載の反応器。

【請求項4】 該混合金属酸化物が、 La_2CuO_4 である、請求項3に記載の反応器。

【請求項5】 該混合金属酸化物活性物質(12)が、 $La_{1.8}Ba_{0.2}CuO_4$ ； $La_{1.7}Sr_{0.3}Cu_{0.9}V_{0.1}O_4$ ； $La_{1.9}K_{0.1}Cu_{0.7}Cr_{0.3}O_4$ ； $La_{1.8}Ba_{0.2}Cr_{0.7}V_{0.3}O_4$ 及び $La_{1.9}K_{0.1}Cu_{0.95}V_{0.05}O_4$ から成る群から選ばれる、請求項3に記載の反応器。

【請求項6】 該混合金属酸化物が $La_{1.9}K_{0.1}Cu_{0.95}V_{0.05}O_4$ である、請求項4に記載の反応器。

【請求項7】 活性物質のベッド(11)が、球状、規則的又は不規則形状のペレット又は中空押出し物形状の活性物質本体(12)の集合体の形態にある、請求項2～6のいずれか一項に記載の反応器。

【請求項 8】 活性物質の本体（12）が、セラミックバインダー物質を含む、請求項 7 に記載の反応器。

【請求項 9】 該セラミックバインダー物質が、シリカ、チタニア又はアルミナ又はそれらの任意の組合せを含む、請求項 8 に記載の反応器。

【請求項 10】 該セラミックバインダー物質が、約 3 質量 % の割合で存在する、請求項 8 又は 9 に記載の反応器。

【請求項 11】 該活性物質の本体（12）が、球状形態にある、請求項 8 ～ 10 のいずれか一項に記載の反応器。

【請求項 12】 該排出ガスをプラズマ状態に励起する為の手段（5、6、9、10、14）が、混合金属酸化物活性物質（12）のベッド（11）から分離しており、且つ混合金属酸化物活性物質（12）のベッドに先行する、請求項 1 ～ 11 のいずれか一項に記載の反応器。

【請求項 13】 該ガスをプラズマ状態に励起する為の手段が、活性物質のベッド（11）と接触している少なくとも二つの電極（6、14）と、該活性物質のベッド（11）の間隙において、該排出ガスをプラズマ状態に励起するのに十分な電位差を適用する為の手段（9、10）を含む、請求項 1 ～ 11 のいずれか一項に記載の反応器。

【請求項 14】 誘電バリアーが、更に前記二つの電極（6、14）の間に設けられる、請求項 13 に記載の反応器。

【請求項 15】 該誘電バリアーが、更に前記二つの電極（6、14）の一つ又は両方の表面上に被膜状に設けられる、請求項 14 に記載の反応器。

【請求項 16】 高誘電率の物質が、更に該活性物質のベッドに導入される、請求項 13 に記載の反応器。

【請求項 17】 該活性物質（12）のベッドが、ガス透過性一体構造である、請求項 1 ～ 12 のいずれか一項に記載の反応器。

【発明の詳細な説明】

【0001】

(発明の分野)

本発明は、ガス媒体のプラズマ処理に関し、特に、内燃機関の排気からの炭素質及び窒素質燃焼生成物の放出の減少に関する。

(発明の背景)

内燃機関の開発並びに使用に際して最大の問題の一つは、その様な機関からの有害な排気である。最も有害な物質は、特にディーゼル機関の場合には、微粒子物質（主に炭素）及び窒素酸化物（ NO_x ）の二つである。益々厳しい排気抑制規制は、内燃機関及び車両製造業者にそれらの物質のより効率的な除去方法、特に内燃機関の排気からの除去方法の探索を強制している。残念ながら、実際には、内燃機関の排気の上記成分の一つに関わる状態を改善する多くの方法は、一方の成分に関わる状態を一層悪くすることが分かった。それでも、内燃機関の排気からの微粒子排気を捕捉する為の様々なシステムが研究されており、特に、微粒子排気トラップが微粒子物質で飽和された時にその様な微粒子排気トラップを再生出来るシステムの研究が為されている。

【0002】

その様なディーゼル排気微粒子フィルターの例としては、EPA0010384、米国特許第4,505,107号明細書；第4,485,622号明細書；第4,427,418号明細書及び第4,276,066号明細書；EP0244061；EP0112634及びEP132166が挙げられる。

上記の場合その全てにおいて、微粒子物質は、多孔質の、通常はセラミックのフィルター本体（捕捉されたディーゼル排出微粒子が燃焼し去る温度にフィルター本体を加熱することによって再生される）の間隙において微粒子物質を簡単な物理的捕捉によってディーゼル排気ガスから除去される。EP0010384はセラミックビーズ、金網又は金属スクリーンの使用を開示しているが、殆どの場合、フィルター本体は一体構造である。米国特許第4,427,418号明細書は、セラミック被覆ワイヤー又はセラミック繊維の使用を開示している。

英国特許第2,274,412号明細書は、内燃機関排出ガスからの微粒子及

び其の他の汚染物質を除去する為の方法並びに装置を開示している。そこでは、排出ガスは、供給されたペレット物質、好ましくは、強誘電性で、高い誘電率を有する物質のベッドを通される。酸化、特に放電酸化による微粒子の除去に加えて、ペレット用の強誘電性物質としてチタン酸バリウムの使用を例示して、 NO_x 還元を触媒する為に適用されるペレットの使用による窒素に対する NO_x ガスの還元が開示されている。

【0003】

又、米国特許第3,983,021号明細書、第5,147,516号明細書及び第5,284,556号明細書は、窒素酸化物の触媒的還元を開示している。然しながら、米国特許第3,983,021号明細書は、単に、無声グロー放電（その温度は、更に高次の窒素酸化物へのN又はNOの酸化が起らない値以下に保たれる）中でのNOのNへの還元を開示しているに過ぎず、炭化水素の同時除去については全く開示していない。

所謂接触体が米国特許第3,983,021号明細書の方法では使用され、そこに開示されたものの幾つかは幾らかの触媒的性質を有するかも知れないが、触媒作用が米国特許第3,983,021号明細書の方法の必須要件である事が明らかではない。其の外の表面特性、例えば、大きな表面積物質上での吸着が、米国特許第3,983,021号明細書の方法の基本である。

米国特許第5,147,516号明細書は、 NO_x を除去する為の触媒の使用に触れていないが、例示されている触媒物質は、硫黄耐性であり、それらの触媒活性がそれらの表面特性よりはむしろそれらの形態からもたらされるものであることが極めて明確に定義されている。

又、その操作条件は、極めて厳密に定義されている。例示されている放電のタイプ（若しあれば）については特別記載されていない。開示されている内容の全ては、“コローナ触媒”物質の構造によって促進される電子-分子相互作用による NO_x 除去であって、本発明に含まれる分子間相互作用による NO_x 除去ではない。米国特許第5,147,516号明細書の発明によって処理されるガス流からの炭化水素の同時除去に就いては全く開示されていない。

【0004】

米国特許第5, 284, 556号明細書は、内燃機関の排気からの炭化水素除去を開示している。然しながら、其の方法は、所謂無声タイプの放電、即ち、二つの電極の内一つが絶縁されている電極の間で起る放電における解離の一つに過ぎない。開示されている装置は、開放型放電室であって、充填ベッド装置ではない。電極の一つに NO_x 還元触媒の沈着の可能性が記載されている。

広く一般に、静電気の力による帯電微粒子物質の沈殿は又公知である。然しながら、この場合、沈殿は、通常、大きな平面電極又は金属スクリーン上で起る。

一般式 $\text{A}_{2-x}\text{A}^1\text{B}_{1-y}\text{B}^1\text{O}_4$ 、又は $\text{A}=\text{A}^1$ 及び $\text{B}=\text{B}^1$ の場合の A_2BO_4 を有する層状化ペロブスカイトの使用が、ディーゼル煤煙微粒子を伴う NO_x の還元の為に、過剰の酸素の存在下で検討されている (Yosutake Teraoka et al., in a paper "Simultaneous Catalytic Removal of NO_x and Diesel Soot Particulate Over Perovskite-related Oxides" Catalysis Today volume 27, (1996) 107-115 and Guido Saracco et al., in a paper "Simultaneous Abatement of Diesel Soot and NO_x by Perovskite-type Catalysts" Ceramic Transactions volume 73, 27-38 (1997))。然しながら、この論文は、共に、単にそこに含まれる化学反応の解明に関するものであって、内燃機関と共に使用する為の実用的反応器の設計に関するものではない。研究された物質は消極的に使用され、即ち、多分加熱されずに使用されていて、それらは外部的影響を受けることはない。

【0005】

(発明の開示)

其の観点の一つの本発明によれば、排出ガスから窒素酸化物及び炭素質燃焼生成物の同時除去の為のプラズマ反応器であって、ガス排出系中に接続される反応器室、該反応器内に含まれる活性物質のガス透過性ベッド、排出ガスを活性物質のベッドに通す為の手段、及び活性物質のベッドを通過する排出ガスをプラズマ状態に励起する為の手段を含む反応器において、活性物質のベッドが、一般式 $\text{A}_{2-x}\text{A}^1\text{B}_{1-y}\text{B}^1\text{O}_4$ を有する混合金属酸化物を含むことを特徴とする反応器が提供される。

其の観点の今一つの本発明によれば、内燃機関の排出ガスから窒素酸化物及び炭素質燃焼生成物の同時除去の為のプラズマ反応器であって、内燃機関のガス排

出系中に接続される反応器室、該反応器内に含まれる活性物質のガス透過性ベッド、排出ガスを活性物質のベッドに通す為の手段、及び活性物質のベッドを通過する排出ガスをプラズマ状態に励起する為の手段を含む反応器において、活性物質のベッドが、一般式 $A_{2-x}A^1B_{1-y}B^1{}_yO_4$ を有する混合金属酸化物を含むことを特徴とする反応器が提供される。

反応器は二つの構成成分に分離することが出来、その内の一つでは、ガス媒体がプラズマ状態に励起され、第二の部分では、励起されたガス媒体が混合金属酸化物活性物質と接触する。

【0006】

反応器の励起構成成分は、英国特許第2, 274, 412号明細書に開示されている通常の形態のもの、或いは、コロナ放電装置又は無声放電装置として知られている誘電バリアー装置であることが出来る。

好ましくは、活性物質のベッドは、球状、規則的に又は不規則的に形成されたペレット、又は中空押出し物の形態の活性物質の本体の集合体形態にある。活性物質の本体は、シリカ、アルミナ又はチタニア又はそれらの組合せ、例えばシリカーチタニアの様なセラミックバインダーを含んでも良い。バインダーは、ゲル誘導されても良く、特に、活性物質の球体を必要とする場合にはゲル誘導されても良い。

多くの層状化ペロブスカイト組成物は、 A 、 A^1 が La 、 Sr 、 Ba 及び K 元素から選ばれ、 B 、 B^1 が、 Co 、 Mn 、 Cr 、 Cu 、 Mg 及び V 元素から選ばれる場合に製造することが出来る。例としては、 $La_{1.8}Ba_{0.2}CuO_4$ ； $La_{1.7}Sr_{0.3}Cu_{0.9}V_{0.1}O_4$ ； $La_{1.9}K_{0.1}Cu_{0.7}Cr_{0.3}O_4$ ； $La_{1.8}Ba_{0.2}Cr_{0.7}V_{0.3}O_4$ 及び $La_{1.9}K_{0.1}Cu_{0.9}V_{0.05}O_4$ が挙げられる。この内最後のものが、基本物質 La_2CuO_4 として、本発明の実施で使用するのに特に適する。

【0007】

本発明を、更に、添付の図面を参照しながら説明する。

図1は、内燃機関からの排気から窒素酸化物及び微粒子炭素を同時に除去する為の本発明を具体化する反応器の縦方向断面図である。

図2は、本発明の第二の実施態様の縦方向断面図である。

図1において、内燃機関からの排気から NO_x 及び微粒子炭素質燃焼生成物を同時に除去する為の反応器1は、円筒状ステンレススチール室2から成り、円筒状ステンレススチール室2は、入口スタブ3及び出口スタブ4を有し、それによって内燃機関の排出系に接続することが出来る。室2は、使用に当っては、アース点5に接続される様に配置される。穿孔処理された円筒状ステンレススチールの内側及び外側電極6及び14は、電氣的に絶縁している支持体7及び8の手段によって室2内に同軸に配置される。電極6及び14並びに支持体7及び8によって仕切られた空間11は、この例では、12で簡単な略図で例示される活性物質のペレットのベッドで充填される。内側電極6の上流端は密閉され、絶縁されている貫通端子10を介して、ペレット12の間の間隙で排出ガス中の非熱的プラズマを励起するのに十分な電圧の供給源9に接続する様に配置される。この目的の為に都合の良い電圧は、約10kV～30kVの電圧であり、規則的にパルス化された直流電位又は連続的に変動する交流電位であっても良い。一般的には、ベッド深さ30mm当り20kVの電圧を使用する。

【0008】

入口スタブ3に近い支持体7は、その外周のまわりに規則的に配置された多数の軸穴13を有し、反応器1の外側電極14と室2との間の空間15の中に排出ガスを強制的に導入させ、そこから放射状に、内側電極6を通過する前に活性物質のベッド12を通し、排出スタブ4を介して室2から排出ガスが出て行く。

活性物質のベッド12は、層状化ペロブスカイト、例えば、 La_2CuO_4 の球体の集合体から成る。球状体を造ることの出来るその他の層状化ペロブスカイト物質は、部分的に置換された物質 $\text{La}_{1-x}\text{K}_{0.1}\text{Cu}_{0.95}\text{V}_{0.05}\text{O}_4$ である。

球体は、セラミックバインダー、例えば、シリカ、アルミナ又はチタニア又はそれらの組合せを含み、このバインダーは、例えば、ソルーゲル物質又は微粉末から誘導することが出来る。バインダー物質の一般的な割合は、3質量%である。又、其の他の形状として、ペレットを使用することが出来、例えば、それらは不規則な形状或いは押出し物であることが出来る。ペレットの後者の形状の製造は、ペレットが造られる前駆物質中に、シリカーチタニアの様なセラミックバイ

ンダーを含ませる事によって促進される。

【0009】

一般式 $A_{2-x}A^1B_{1-y}B^1O_4$ を有する其の他の混合酸化物も、其の他のセラミックバインダーが使用できる様に使用することが出来、それらは、反応器中のベッド12を形成するペレット、ビーズ又は押出し物の間の間隙で排気ガス中にプラズマを確立し且つ維持するのに十分な誘電率を有する。別途、或いは更に、電極(6、14)間の誘電バリアーを用意することが出来、反応器は誘電タイプの反応器として作動する。その様な誘電バリアーは、電極(6、14)の一つ又は両方の上に被膜の形態で極めて好都合良く用意される。更なる選択の余地としては、混合酸化物物質と一緒に、或る割合でチタン酸バリウムの様な高誘電率の追加物質を含ませることである。

上述の本発明の実施態様では、ペレットベッド12中のペロブスカイト活性物質は、又、反応器1を通過する排出ガスがプラズマ状態に励起される為に十分な電氣的ストレスに掛けられることの出来る誘電媒体として使用される。然しながら、これは本発明の必須の要件ではなく、排出ガスは、ペロブスカイト物質に暴露される前に別の励起工程に掛けることが出来る。

図2は、実施される第二実施態様を示し、第一の実施態様の相当する構成成分に類似の構成成分は同じ参照数字を有する。反応器室1は拡張され、上記の反応器に類似の第一励起反応器であって、ペロブスカイトペレット12が、排出ガスの励起を最適にする為に選ばれた誘電性の、好ましくは強誘電性の物質で置換えられている第一励起反応器、及び、レイアウトで第一の反応器に類似の第二反応器であって、ペロブスカイト活性物質のペレット12のベッド11に電氣的に接続していない第二反応器を含む。

【0010】

非熱的プラズマ、例えば、コロナ放電反応器又は誘電バリアー又は無声放電反応器を含む励起反応器のその他の形態が使用できる。又、第二反応器はペロブスカイト活性物質の軸流一体型ガス透過性ベッドで置換えることが出来る。

反応器を二つの構成成分、即ち励起構成成分と処理構成成分とに分離することによって、ペロブスカイトの作用の感受性並びに反応系全体の効率を高めて、排

出ガスの励起を最大にすることが出来る。

【図面の簡単な説明】

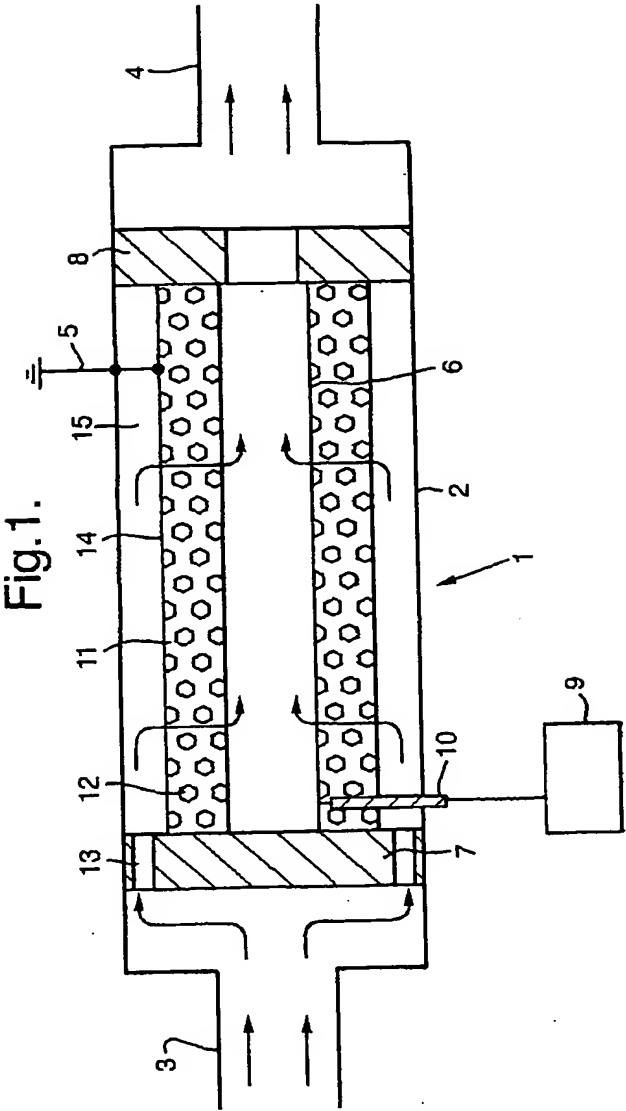
【図1】

内燃機関からの排気から窒素酸化物及び微粒子炭素を同時に除去する為の本発明を具体化する反応器の縦方向断面図である。

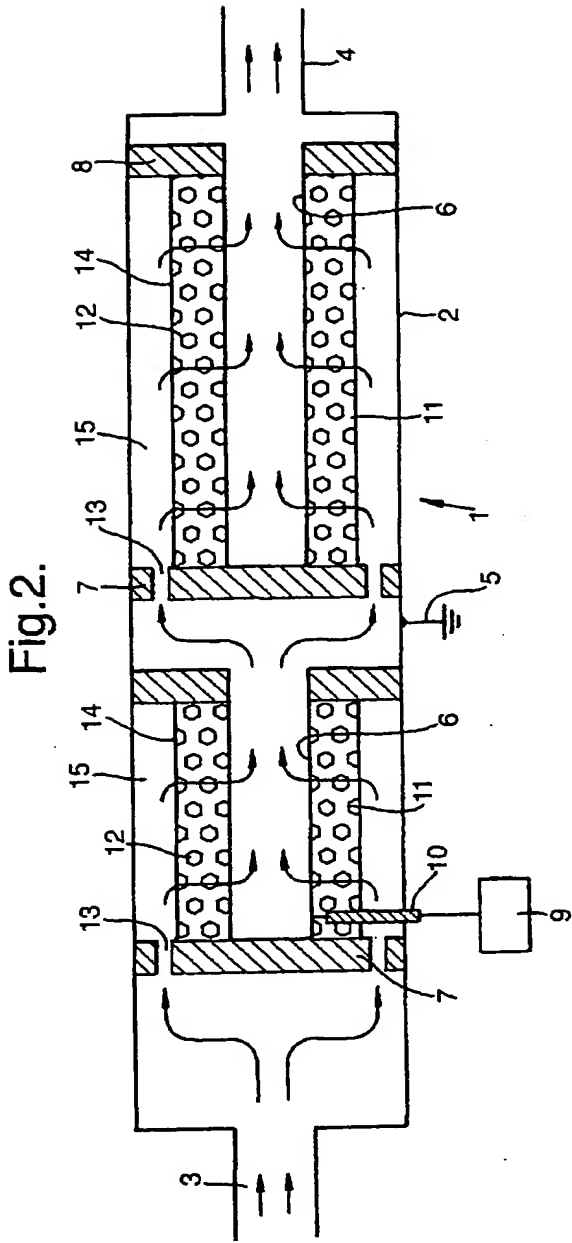
【図2】

本発明の第二の実施態様の縦方向断面図である。

【図1】



【図 2】



【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

 Int'l. Application No.
PCT/GB 99/00212

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
IPC 6	B01D53/32	B01D53/94 F01N3/08 F01N3/20 F01N3/02
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)		
IPC 6 B01D B01D F01N		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search phase of data base and, where practical, search terms used		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 5 609 736 A (YAMANO TOSHIKI) 11 March 1997	1,2,7-9, 11,13, 14,16 3-6,10
A	see column 2, line 8 - line 33 see column 4, line 58 - line 57 see column 6, line 54 - line 59 see column 8, line 31 - line 63 see figures 1A-4	
X	GB 2 274 412 A (ATOMIC ENERGY AUTHORITY UK) 27 July 1994 cited in the application see claims 1-7 see page 9, line 25 - line 28	1,2, 12-14
-/--		
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of box C. <input checked="" type="checkbox"/> Patent family members are listed in annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art. "Z" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search		Date of mailing of the international search report
19 April 1999		04/05/1999
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.O. Box 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx 31 651 epo nl Fax (+31-70) 340-2016		Authorized officer Borello, E

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.

PCT/GB 99/00212

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	WO 98 00221 A (LOW EMISSIONS TECHNOLOGIES RES) 8 January 1998 see page 1, line 5 - line 13 see page 8, line 19 - line 24 see page 10, line 8 - line 24 see page 11, line 27 - page 12, line 12 see page 13, line 4 - page 14, line 31 see figures 2,4	1,2, 13-17 7-11
X A	WO 98 02233 A (BATTELLE MEMORIAL INSTITUTE) 22 January 1998 see the whole document	1,2, 13-17
A	US 5 711 147 A (MERRITT BERNARD T ET AL) 27 January 1998 see abstract see column 8, line 30 - line 47 see column 13, line 13 - line 19 see figures 1,3	1,2,7-9, 12-15
A	WO 91 03315 A (US GOVERNMENT) 21 March 1991 see page 5, line 6 - line 21 see page 7, line 28 - page 8, line 7; figures 1-6	1,2
A	- DE 36 44 090 A (BBC BROWN BOVERI & CIE) 7 July 1988 see column 3, line 49 - line 60	1-3, 13-15
A	US 3 983 021 A (HENIS JAY M) 28 September 1976 cited in the application see abstract; figure 1	1,2,7,12
A	SARACCO GUIDO ET AL.: "Simultaneous Abatement of Diesel Soot and Nox by Perovskite-type catalyst" CATALYST MATERIALS FOR HIGH-TEMPERATURE PROCESSES, vol. 73, 1997, pages 27-38, XP002100243 cited in the application see the whole document	1-6

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

Int. Appl. No.

PCT/GB 99/00212

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 5609736	A	11-03-1997	US 5843288 A	01-12-1998
GB 2274412	A	27-07-1994	DE 69314928 D	04-12-1997
			DE 69314928 T	19-03-1998
			EP 0608619 A	03-08-1994
			JP 6241019 A	30-08-1994
			NO 940170 A	21-07-1994
			US 5440876 A	15-08-1995
WO 9800221	A	08-01-1998	US 5746984 A	05-05-1998
			AU 3403397 A	21-01-1998
WO 9802233	A	22-01-1998	NONE	
US 5711147	A	27-01-1998	WO 9809699 A	12-03-1998
WO 9103315	A	21-03-1991	US 4954320 A	04-09-1990
			AU 4847690 A	08-04-1991
			CA 2021692 A	01-03-1991
			DK 78191 A	27-06-1991
DE 3644090	A	07-07-1988	NONE	
US 3983021	A	28-09-1976	DE 2227949 A	04-01-1973
			FR 2140584 A	19-01-1973

フロントページの続き

(81)指定国 EP(AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AP(GH, GM, KE, LS, MW, SD, SZ, UG, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZW

Fターム(参考) 3G091 AA18 AB14 BA14

4D048 AA06 AA14 AA18 AB05 BA01Y

BA03X BA06X BA07X BA14X

BA15Y BA18X BA23X BA25Y

BA28Y BA35X BA37Y BA41X

BA42X BB01 CD10 EA03